

二硫化钼的电子能带结构和低温输运实验进展

吴帆帆 季怡汝 杨威 张广宇

Experimental research progress of electronic band structure and low temperature transport based on molybdenum disulfide

Wu Fan-Fan Ji Yi-Ru Yang Wei Zhang Guang-Yu

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 127306 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20220015

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220015>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于单层二硫化钼的高品质因子、高品质因数的四波段完美吸收器

A four-band perfect absorber based on high quality factor and high figure of merit of monolayer molybdenum disulfide

物理学报. 2021, 70(12): 128101 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20202163>

石墨烯封装单层二硫化钼的热稳定性研究

Thermal stability of MoS₂ encapsulated by graphene

物理学报. 2018, 67(22): 226501 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181255>

拉伸应变对单层二硫化钼光电特性的影响

Effects of photoelectric properties of monolayer MoS₂ under tensile strain

物理学报. 2021, 70(21): 217101 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210816>

非共振圆偏振光作用下单层二硫化钼电子结构及其自旋/谷输运性质

Electronic structure and spin/valley transport properties of monolayer MoS₂ under the irradiation of the off-resonant circularly polarized light

物理学报. 2018, 67(10): 107101 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180213>

石墨烯莫尔超晶格体系的拓扑性质及光学研究进展

Topological properties of graphene moiré superlattice systems and recent optical studies

物理学报. 2019, 68(22): 220303 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191317>

等离子体谐振腔对二硫化钼的荧光增强效应

Fluorescence enhancement of monolayer MoS₂ in plasmonic resonator

物理学报. 2019, 68(23): 237801 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191121>

专题: 低维材料的新奇物性

二硫化钼的电子能带结构和低温输运实验进展*

吴帆帆¹⁾²⁾ 季怡汝¹⁾²⁾ 杨威^{1)2)3)†} 张广宇¹⁾²⁾³⁾

1) (中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家研究中心, 北京 100190)

2) (中国科学院大学物理科学学院, 北京 100049)

3) (松山湖材料实验室, 东莞 523808)

(2022 年 1 月 4 日收到; 2022 年 2 月 11 日收到修改稿)

二硫化钼是一种层状的过渡金属硫族化合物半导体, 它在二维自旋电子学、谷电子学及光电子学领域有很多的应用. 本综述以二硫化钼为代表, 系统介绍其单层、双层及转角双层的堆垛和能带结构; 介绍了转角双层莫尔超晶格的制备方法、以及低温电学输运方面的实验进展, 例如超导和强关联现象; 分析了转角过渡金属硫化物莫尔超晶格在优化接触和样品质量等方面存在的一些挑战, 并展望该领域未来的发展.

关键词: 二硫化钼, 能带结构, 低温输运, 莫尔超晶格

PACS: 73.22.-f, 73.50.-h, 74.70.Xa, 73.21.Cd

DOI: 10.7498/aps.71.20220015

1 引言

二维层状过渡金属硫族化合物 (TMDs) 由于其原子级厚度和合适的半导体带宽成为当下研究最热门的二维材料之一. TMDs 的通用表达式为 MX_2 , M 代表过渡金属元素包括 Nb, Ta, Mo, W, Re 等; X 代表硫族元素包括 S, Se, Te 等^[1]. 其中, 以 $2H$ 相的 MoS_2 , $MoSe_2$, WS_2 和 WSe_2 四种半导体材料的研究居多, 它们都在空气中具有很好的稳定性^[2]. 同时, TMDs 原子在层内通过强的化学键结合, 在层间通过弱的范德瓦耳斯力组合起来, 因此可通过机械剥离法得到单层样品. 除了机械剥离法, 人们还可以用化学气相沉积^[3–5]、分子束外延^[6,7]的方法获取大面积的单层样品, 甚至制备出高质量的晶圆级单层二硫化钼^[8–10].

由于这些二维半导体材料的带隙分布非常广, 从近红外波段到可见光波段, 因此具有丰富的电学

和光学性能^[11]. 以二硫化钼为代表的单层 TMDs 中具有许多与电子自由度相关的独特性质. 单层的二硫化钼作为一个直接带隙的半导体, 其导带和价带的极值均位于六方布里渊区的 K 和 $-K$ 点, 因此主要由 K 谷和 $-K$ 谷电子决定了它的电学和光学性质^[12,13]. 单层 TMDs 中一个最重要的性质是激子的光学跃迁遵循与谷有关的选择定则^[14,15]: K 谷的激子只和右旋极化光耦合, $-K$ 谷只和左旋极化光耦合, 因此材料的能谷信息可以和不同手性的光对应起来, 从而实现谷自旋的量子调控^[16,17]. 不同于单层的过渡金属硫族化合物, 双层及以上的 TMDs 材料一般都是间接带隙半导体, 带隙大小随着层数增加呈减小趋势, 导带的底部从 K 谷转移到了 Q 谷, 价带顶从 K 谷转移到 Γ 谷^[18,19]. 一方面, TMDs 的载流子迁移率普遍比单层石墨烯低很多, 主要是和其抛物线型的能带结构 (较大的电子有效质量) 以及较大的带隙有关^[20]. 另一方面, TMDs 载流子很高的电子有效质量^[21–23] 和面内电荷的屏

* 国家重点研发计划 (批准号: 2020YFA0309600, 2021YFA1202900)、国家自然科学基金 (批准号: 11834017, 61888102)、中国科学院战略性先导科技专项 B (批准号: XDB30000000, XDB33000000) 和广东省重点领域研发计划 (批准号: 2020B0101340001) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wei.yang@iphy.ac.cn

蔽降低^[24], 意味着其中电子相互作用会很强^[25], 因此是研究复杂的量子多体相互作用的一个很好的平台. 除了值得探究的输运性质以外, TMDs 材料特殊的能带结构使得它具有有趣的激子行为. 激子作为固体中的一种元激发, 其状态与材料的电子能带结构和外场作用有关. 光学实验证明了在单层 TMDs 中存在与直接跃迁相关的激子, 而且由于存在强大的库仑相互作用, 它们的激子束缚能高达几百个毫电子伏特^[26,27]. 同时, 由于直接跃迁不需要声子辅助, 单层 TMDs 发光跃迁的概率很大, 可以成为很强的发光中心. TMDs 的荧光发射还容易受到电场调控, 尤其是层间激子在空间电场的调控下形成荧光峰位随电场移动的量子限制斯塔克效应^[28]. 激子效应对半导体中光吸收、光学非线性作用等物理过程具有重要影响. 在实际应用中, 基于单层 TMDs 的 p-n 结可实现高效的电致发光^[29,30]. 最近热门的“魔角石墨烯”推动了对转角 TMDs 体系的研究, 莫尔超晶格是能够调节电子的动能和势能比, 为研究强关联物理现象提供了一个方便的平台. TMDs 转角体系发现了关联绝缘态、超导、

相变与量子临界行为、量子反常霍尔效应等诸多有趣的现象^[31–34], 涵盖了凝聚态物理中几个最热门的方向. 同时, 由于简单的结构, TMDs 莫尔超晶格有望成为三角晶格上哈伯德模型的量子模拟器^[35]. 综上所述, TMDs 的这些独特性质可以让它们在场效应晶体管、光电器件、电子自旋、低温强关联量子现象等多方面大展身手. 本文主要综述了单双层及转角双层二硫化钼中的新奇电子能带特性和有关的实验进展.

2 单层二硫化钼

机械剥离的单层二硫化钼厚度约 0.65 nm, 晶格类型为六角晶格 (2H 相), 晶格常数约 0.315 nm. 单层二硫化钼是由 S—Mo—S 化学键组成的三明治结构^[36], 如图 1(a) 所示. 2H 相的单层二硫化钼导带底和价带顶位于 K 谷, 是一个直接带隙半导体^[37], 如图 1(b) 所示. 拉曼信号具有平面内振动的 E_{2g} 峰以及平面外振动的 A_{1g} 峰^[38]. 2H 相的单层二硫化钼不存在空间反演对称性, 同时钼原子的 d 轨道

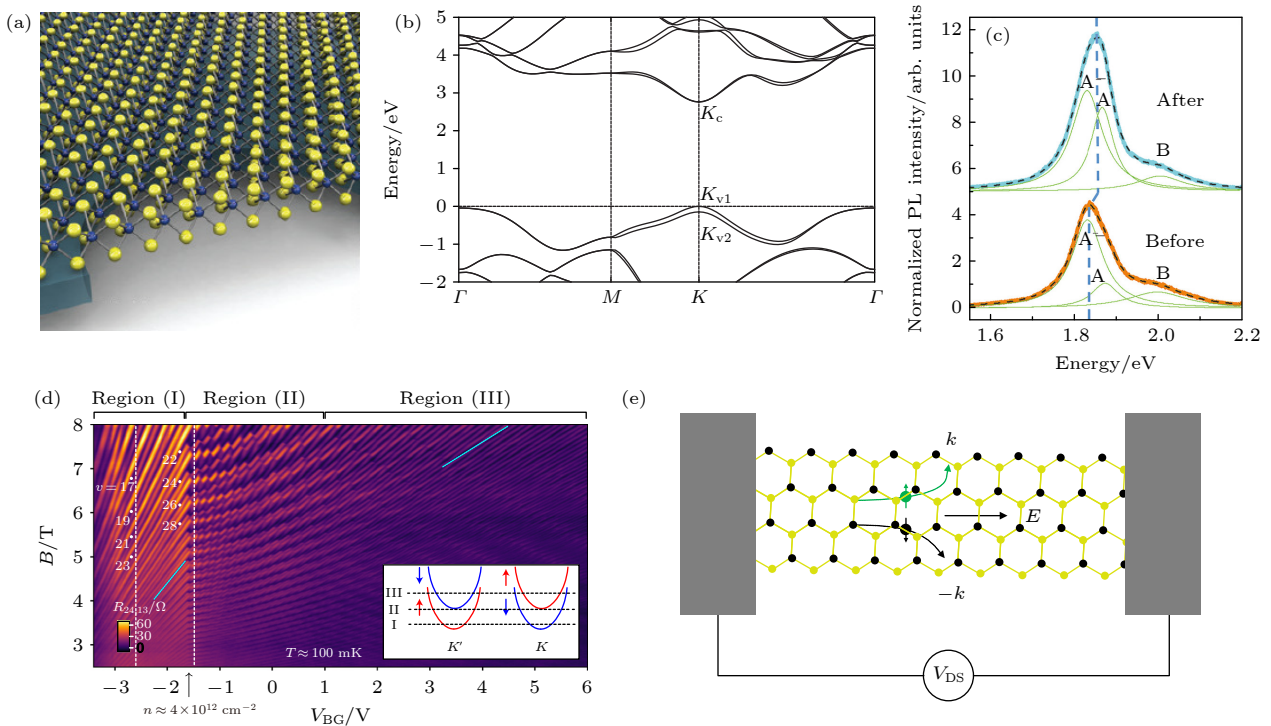


图 1 单层二硫化钼 (a) 2H 相原子结构示意图^[36]; (b) 准粒子自洽格林函数方法计算得到的能带结构^[37]; (c) 荧光谱^[42]; (d) 朗道扇形图^[58]; (e) 谷霍尔效应示意图

Fig. 1. Single layer molybdenum disulfide: (a) Schematic diagram of atomic structure of 2H phase^[36]; (b) energy band structure obtained by quasiparticle self-consistent GW (QS GW) method^[37]; (c) photoluminescence spectra^[42]; (d) Landau fan^[58]; (e) schematic of valley hall effect.

引入了很强的自旋-轨道耦合 (SOC), 并打破了动量空间 Γ - K 连线上的自旋简并, 使得价带和导带的 K 谷都出现不同自旋电子的能量劈裂^[39–41], 由于存在时间反演对称性, K 谷和 $-K$ 谷电子自旋劈裂的方向相反, 被称为自旋-能谷锁定. 价带中这一自旋劈裂的现象更显著. 在实验上, 在单层二硫化钼的荧光谱实验中看到的 1.85 eV 和 2 eV 附近很强的荧光峰分别对应 K 谷不同自旋单态配对形成的激子, 称为 A 和 B 激子^[12,13,42], 如图 1(c) 所示. AB 激子的能量差约为 150 meV, 基本等于价带自旋劈裂的能量, 在导带这一自旋极化的能量差只有几个毫电子伏特^[43]. 自旋-轨道耦合效应导致了 K 谷出现圆极化光选择定则, K 谷底部只存在上自旋的空穴, 而 $-K$ 谷底部只存在下自旋的空穴, 称为自旋谷锁定效应. 这一效应在二硫化钼的体块材料中就消失了. 通过自旋谷锁定效应, 不同手性的光可以选择性将载流子注入到对应的谷中, 因此单层二硫化钼可以有效地进行光电信息传递.

本征半导体材料的费米面位于禁带当中, 如果对材料进行电子或空穴掺杂, 根据费米统计, 费米面会向上或向下移动^[44]. 目前获得的二硫化钼材料都是电子掺杂的半导体^[8,45–48], 理论计算表明单层二硫化钼在导带的室温迁移率比较高并具有一定的开关比, 而实际上二硫化钼的电学性质会被杂质和周围的介电环境影响^[49], 影响了其内在的物理性质. 2011 年 Kis 研究组^[50] 利用二氧化铪作为顶栅介质, 测到单层二硫化钼的场效应迁移率能达到 $200 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$. 次年通过改善工艺他们又将这一结果提高到 $1000 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ ^[51], 基本上接近单层二硫化钼的极限. 绝大部分课题组在二氧化硅上测到的迁移率为 $0.1\text{--}50 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ ^[52,53], 在高介电绝缘衬底上迁移率可提升至 $15\text{--}60 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ ^[20]. 由于金属和二硫化钼之间存在很大的接触电阻, 两端法的电学测量低估了实际的沟道迁移率. 大部分实验结果显示, 当二硫化钼沟道载流子浓度低于 $1.0 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ 时, 四端测量结果依然体现非金属特性^[54,55]. 造成这一结果的主要原因是存在于样品中的散射中心和无序杂质^[20], 这些散射和无序态可能源于晶格缺陷、电荷杂质、衬底吸附等. 将样品封装在六方氮化硼衬底中会降低衬底的散射, 提高样品的迁移率, 成为当前研究二维半导体材料输运特性最有效的方法之一. 如何将二硫化钼封装在六方氮化硼内的同时并做好低温下的接触是一个困

难的问题. 2015 年哥伦比亚大学的 Hone 课题组^[56] 采用石墨烯作为二硫化钼的接触电极, 在低温下实现了欧姆接触, 他们在六层二硫化钼中测到的霍尔迁移率高达 $34000 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$; 在 2019 年, 香港科技大学的王宁课题组^[57] 采用了选择性刻蚀六方氮化硼再蒸钛/金的办法, 在双层二硫化钼中测出的场效应迁移率高达 $24000 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$; 2018 年, 苏黎世联邦理工学院的 Ensslin 课题组^[58] 采用了金做单层二硫化钼的范德瓦耳斯接触, 得到的二硫化钼量子迁移率高达 $5000 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$. 这些研究为解决单层二硫化钼的接触问题提供了一些思路.

自由运动的电子在磁场中会分立成不同的能级^[25,59], 形成朗道能级的最低磁场和电子的迁移率直接相关. 在垂直磁场下, 单层二硫化钼导带底的电子会形成朗道能级, 纵向电导呈现舒布尼科夫-德哈斯 (SdH) 振荡, 人们对振荡进行变温测试, 并拟合了载流子的有效质量约为 0.7 个电子质量^[60]. SdH 振荡的信号和样品的迁移率紧密相关^[23], 随着器件加工工艺的提高, 在单层二硫化钼中观测到 SdH 振荡的最低磁场为 2 T. 在 1.7 K 的测量温度下, 单层二硫化钼形成简并度为 2 的朗道能级, 对应于 K 谷和 $-K$ 谷电子的简并. 随着电子掺杂浓度的提升, 朗道能级的斜率会有一个突变, 意味着电子开始填充 K 谷和 $-K$ 谷自旋-轨道劈裂的上子能带, 如图 1(d) 所示^[58]. 如果将测量温度降低至 mK 量级, 电子间的关联作用会进一步增强, K 谷与 $-K$ 谷的简并度被打破, 形成自旋和谷完全极化的朗道能级, 简并度退化为 1. 如果改变载流子浓度, 奇数和偶数的朗道能级相对强度会发生变化, 这一结果意味着二硫化钼轨道塞曼 g 因子随载流子浓度而改变. 这些极低温的测量结果是由于单层二硫化钼的电子强关联效应所引起的, 无法用单粒子模型解释^[58]. 这些单层二硫化钼的磁输运研究为我们展示了与谷、自旋有关的导带结构及其衍生的丰富物理现象.

二硫化钼是实现除了自旋自由度和电荷自由度之外保持谷自由度的重要材料. 单层二硫化钼不具有空间反演对称性但保留了时间反演对称性, 其能带在 K 谷和 $-K$ 谷具有相反的贝利曲率. 贝利曲率可等效成为布里渊区的有效磁场. 如果在材料面内施加一个电场, 不同谷的电子在电场中会感受到相反的洛伦兹力, 这个力使得相同电性但位于不同谷的电子在面内沿着垂直电场的方向朝相反的两

侧偏转, 如图 1(e) 所示. 这种和谷性质有关的霍尔效应称为谷霍尔效应^[61–64]. 在实验上, 可以利用不同极化的光, 使得不同谷的电子被选择性激发, 就能探测到霍尔电压的信号. 对于自旋-谷锁定的材料, 不同的谷携带的自旋信号相反, 谷霍尔效应伴随着自旋霍尔效应的出现. 本质上来说, 这种霍尔效应依赖于电子-空穴对的形成, 因此又被称为激子霍尔效应, 该效应于 2017 年被东京大学 Iwasa 教授团队^[65]在实验上验证.

除了上文提到的一些特性, 单层二硫化钼还具有很多有意思的性质, 例如: 第一类伊森超导性^[66], 应力可调的物性^[67], 缺陷可调的物性^[68]等.

3 多层二硫化钼

层数是调控二维半导体材料的重要参数. 相比单层二硫化钼, 多层二硫化钼的能带结构和物理特性存在明显区别.

3.1 双层二硫化钼

本征双层二硫化钼由 2 个单层二硫化钼通过旋转 180° 堆垛而成, 如图 2(a) 所示. 双层二硫化

钼保留了空间反演对称性, 因此轨道的贝利曲率变为零, 光的圆极化效应、谷霍尔效应会消失. 但由于垂直电场可以打破双层二硫化钼的空间反演对称性, 因此双层二硫化钼的一个重要特性就是能带特性受电场调控^[69–71]. 类似的例子还有双层石墨烯在垂直电场的作用下会打开一个带隙. 相比于单层二硫化钼谷电子不能轻易被调控, 双层二硫化钼具有反演对称性, 谷相关的贝利曲率均可被垂直电场调控^[70], 提高了可操作性. 在实验上, 双层二硫化钼受栅压调控的谷霍尔效应证实了这一点^[72], 如图 2(c) 所示.

双层二硫化钼除了对称性的改变, 另一个重要的特性是能带结构由直接跃迁转变为间接跃迁. 二硫化钼 K 谷空穴的轨道同时有钼原子和硫原子的贡献, 层间耦合作用强, 价带顶从 K 谷转变为 Γ 谷. 而 K 谷电子的轨道贡献主要来自中间的钼原子, 层间耦合会比较弱, 普遍认为双层二硫化钼的导带底仍然是 K 谷. 但是一部分理论计算结果表明双层二硫化钼的导带底位于非对称的 Q 点^[18]. 2018 年人们通过探测光学激子验证了双层二硫化钼的导带底位于 K 点而非 Q 点^[73]. 如图 2(b) 所示是利用准粒子自洽格林函数方法计算得到的本征

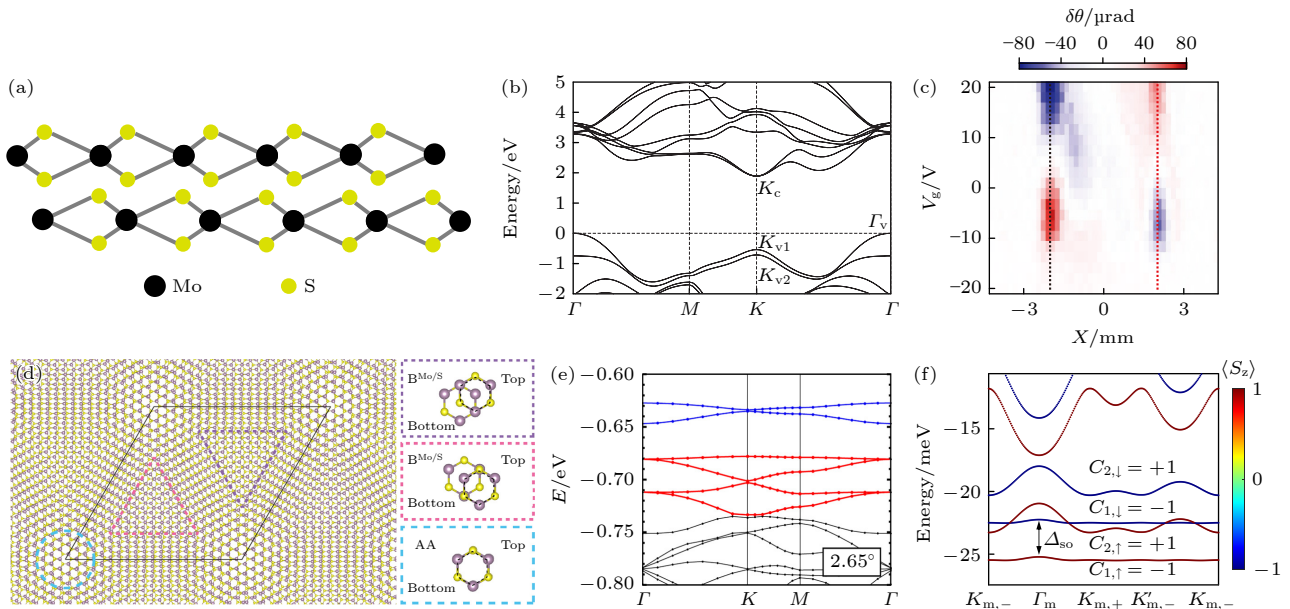


图 2 双层二硫化钼的能带结构与物性 (a) 本征双层二硫化钼的原子结构示意图; (b) 准粒子自洽格林函数方法计算得到的能带结构图^[37]; (c) 电场可调的谷霍尔效应^[72]; (d) 转角双层二硫化钼中的莫尔超晶格结构^[88]; (e) 2.65° 转角的双层二硫化钼的价带能带结构^[88]; (f) 非平庸的拓扑平带^[100]

Fig. 2. Bilayer molybdenum disulfide's band structure and physical properties: (a) Atomic structure of natural double-layer molybdenum disulfide; (b) QSGW calculated band structure^[37]; (c) electric field tunable valley Hall effect^[72]; (d) moiré superlattice in twisted bilayer molybdenum disulfide^[88]; (e) valence band structure of twisted bilayer molybdenum disulfide with 2.65°^[88]; (f) non-trivial topological flat bands^[100].

双层二硫化钼能带结构^[37].

双层二硫化钼中导带的载流子有效质量很大, 存在非常规的多体相互作用效应. 2019 年, 香港科技大学的王宁课题组^[57]发现双层二硫化钼的谷磁化率与载流子浓度有关, 塞曼 g 因子的变化是 12—23.6; 在同一时间, 瑞士的 Ensslin 课题组^[74]发现双层二硫化钼的导带底是由两个弱耦合的单层 K 谷电子所组成的, 这和上面提到的光学实验结果一致. 这些实验结果为进一步测量相关的双层 TMDs 材料以及转角双层 TMDs 材料提供了参考.

3.2 1T 相二硫化钼

二硫化钼除了常见的 2H 相之外, 还具有 3R 相、1T 相和 1T' 相等结构^[75–78]. 1T 相和 2H 相的区别在于它们的层内晶格结构不同, 并导致能带结构有明显区别. 1T 相的二硫化钼晶格是八面体结构, 其顶点的 6 个 S 原子与 Mo 原子的连线互相垂直, 类似于直角坐标轴. 从输运表现来看 2H 相呈现半导体性, 1T 相呈现金属性. 利用这个特性, 使用 1T 相二硫化钼作为金属电极和 2H 相二硫化钼之间的接触可将接触电阻降低至 200—300 $\Omega \cdot \mu\text{m}$ ^[79,80]. 在低温输运测量中, 较大的接触电阻会影响很多信号的探测, 目前无法得知这种不同相之间的接触在低温下是否存在明显的肖特基势垒, 因此需要更多的实验去验证. 如果可行, 这会是二硫化钼等 TMDs 材料低温输运方向的重大突破. 除了用作接触材料, 人们发现少层的 1T 相二硫化钼本身存在超导、铁电等有趣的物理特性^[81,82].

3.3 转角双层二硫化钼

“魔角石墨烯”的出现推动了人们对二维莫尔超晶格的研究^[83–87]. 层间夹角可以调控层间耦合作用, 改变能带结构. 除了石墨烯, 人们也在寻找其他二维材料来研究转角带来的丰富物理现象, 这其中就包括 TMDs 材料.

单层二硫化钼由钼原子和硫原子组成, 从结构上来看, 转角双层二硫化钼的堆垛方式比转角双层石墨烯更丰富^[89]. 当转角接近 0° (又称为 R 堆垛), 晶格结构会出现几种高对称的堆垛中心: 1) AA 堆垛 (上层 Mo 原子对应下层 Mo 原子, 上层 S 原子对应下层 S 原子); 2) AA' 堆垛 (上层 Mo 原子对应下层 S 原子, 上层 S 原子对应下层的晶格空位). 当转角接近 60° (又称为 H 堆垛), 新的高对称中心

包括: 1) AB 堆垛 (上层 Mo 原子对应下层 S 原子, 上层 S 原子对应下层 Mo 原子); 2) A'B 堆垛 (上层 Mo 原子对应下层 Mo 原子, 上层 S 原子对应下层的晶格空位); 3) AB' 堆垛 (上层 S 原子对应下层 S 原子, 上层 Mo 原子对应下层的晶格空位), 如图 2(d) 所示^[88]. 改变转角的大小会影响这些高对称中心的大小和相对位置以及层间距离, 因此可以调控层间耦合、手性光学及电学性质等^[90,91]. 当转角较小时, 电子态会局域地分布在一些高对称中心, 在布里渊区形成动量非常小的能带, 形象地称之为“平带”^[92,93]. 理论上预言在一定转角范围, 转角双层二硫化钼的价带会形成一系列的平带^[88,94,95], 如图 2(e) 所示. 由于单层二硫化钼的价带具有很强的自旋-轨道耦合, 不同自旋的电子能量发生劈裂, 因此价带顶只会引入其中一种自旋的电子, 理论预测在合适的位移电场下莫尔平带可能会呈现陈绝缘体态、量子自旋霍尔态等^[96,97]. 因为二硫化钼的导带自旋-轨道相互作用很弱, 有可能导致上下自旋的莫尔平带交错在一起, 与转角双层石墨烯一样保持电子的四重简并度. 但是实验发现二硫化钼的导带电子具有很强的关联作用^[98,99], 这种强关联效应可能会打破谷和自旋的锁定效应, 导致不同自旋电子填充顺序的改变. 理论预言在同质莫尔超晶格的导带中同样可以诱发非平凡拓扑能带^[100], 如图 2(f) 所示. 同时, 由于 4 条子平带交错在一起, 会出现 1 条子平带填充完全而另 1 条子能带部分填充的情况, 这对应局域电子和巡游电子的耦合, 可能会实现近藤晶格模型中的基本要素^[101].

4 转角过渡金属硫族化合物的挑战和展望

目前对转角二硫化钼的研究主要集中在晶格结构和层间耦合的变化^[102–107], 虽然人们可以转移制备相应的转角器件^[108], 但是器件质量有待提高, 相关的低温输运实验进展也有待发掘. 实验上对二硫化钼导带的平带特性的报道较少, 电输运实验匮乏, 最需要克服的问题是如何制备高质量的器件和保持良好的低温接触. 为了研究转角在输运上的影响, 需要精确控制层与层之间的转角, 将误差降低到 0.1° 以内, 保持不同区域的角度均匀性. 同时还要在转移的过程中降低层与层之间的污染和气泡.

石墨烯和二硫化钼的直边对应于锯齿型/扶手椅型边界, 利用荧光或者二次谐波技术可以确定具体是哪一种边界, 然后将两层材料的直边错开到设定的角度来制备转角体系^[108]. 该方法不仅适用于同质结, 还适用于异质结的制备, 辅助一些高分辨的光学设备, 能达到对角度的精确控制. 另一种较简单的技术是将单晶材料一分为二, 再依次捡起堆垛成想要的角度, 特别适合制备同质结, 例如: 转角石墨烯^[109], 如图 3(a)–(h) 所示; 转角二硫化钼^[108], 如图 3(i), (j) 所示. 这种方法能保证二维材料的界面干净, 也是制备同质结莫尔超晶格最主要的方式, 但是无法制备异质结. 除了上面提到的转移法, 还能通过生长法直接制备出转角双层的 TMDs 材料^[105]. 这种方法效率高, 能保证样品界面无任何气泡和残胶, 但是对于生长条件要求高, 目前无法

得到任意转角的样品. 其他的方法例如利用二维材料界面的超润滑性来实现两层之间的滑动^[110], 优点是精度高, 缺点是效率较低.

在带隙更小的其他过渡金属硫族化合物中更容易实现转角带来的平带和关联效应: 哥伦比亚大学的 Dean 课题组^[31,32] 在 4° – 5° 转角双层二硫化钼的价带观测到电场可调的关联绝缘态, 并在关联态的旁边出现了电阻为零的现象; 2020 年香港科技大学的王宁课题组^[111] 在双层堆叠的转角二硫化钼的价带中看到类似超导的转变; 2021 年康奈尔大学的 Mak 课题组^[33] 在 $\text{MoTe}_2/\text{WSe}_2$ 莫尔超晶格中观测到价带填充在 1 和 2 处的金属绝缘体转变. 他们还在 AB 堆叠的 $\text{MoTe}_2/\text{WSe}_2$ 莫尔超晶格中观测到量子反常霍尔效应, 实现了从莫尔绝缘体到量子反常霍尔绝缘体的拓扑相变^[34]. 这些

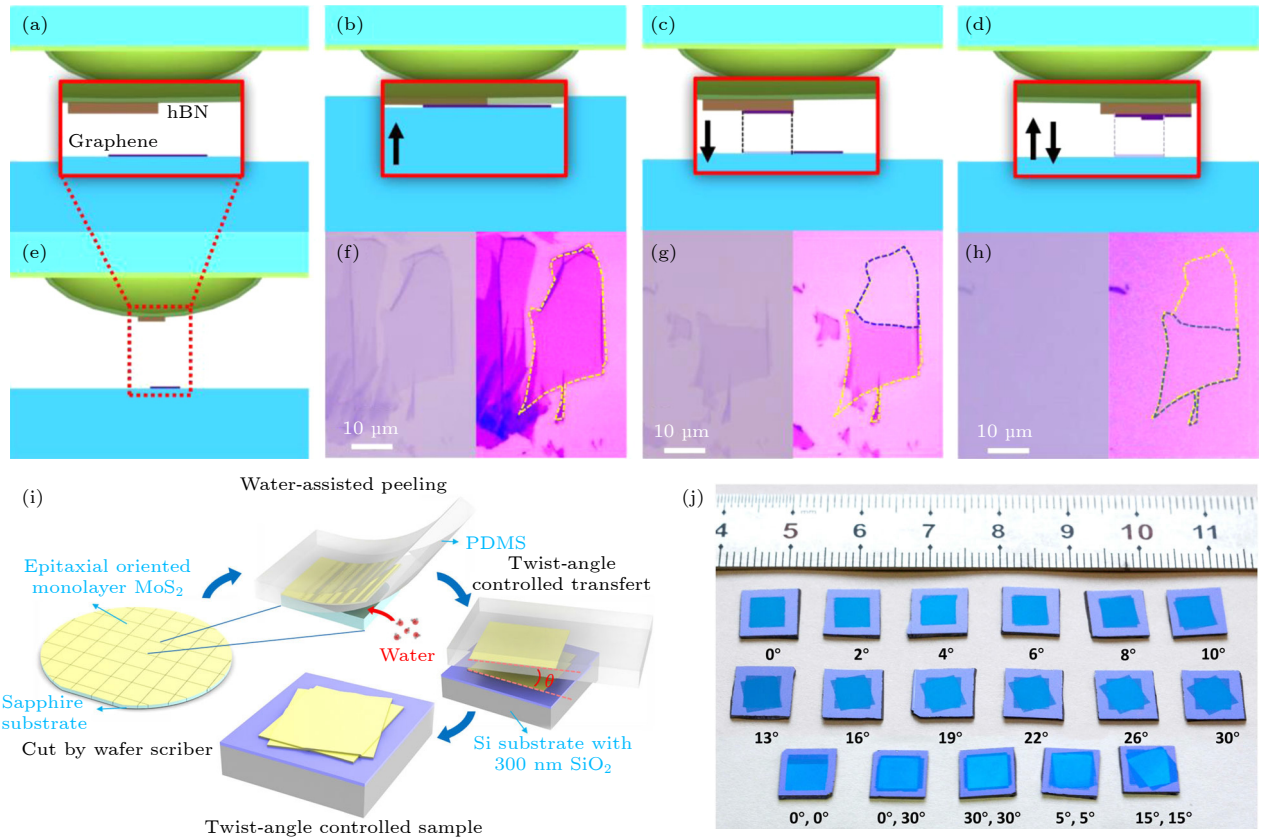


图 3 精准制备不同转角的多层同质结 (a), (e) “捡起堆叠”法示意图, 红色框表示半球形基板的放大视图^[109]; (b)–(d) 示意图过程和 (f)–(h) 相应步骤的光学结果, (b) 和 (f) 表示基板和底部单层石墨烯的部分接触^[109]; (i) 利用聚二甲基硅氧烷 (PDMS) 作为媒介, 将分割好的定向单层二硫化钼堆叠成所需转角^[108]; (j) 在沉积 300 nm 二氧化硅的硅衬底上, 具有精确控制的转角多层 MoS_2 薄膜^[108]

Fig. 3. Twist angle engineering of multilayer homostructures. (a), (e) Schematic of layer pick-up. The red box represents a zoom-in view of the hemispherical handle substrate^[109]. (b)–(d) Schematics and (f)–(h) corresponding optical micrographs of successive stacking steps. Panels (b) and (f) illustrate a partial contact of the handle with the bottom graphene^[109]. (i) The water-assisted transfer process. Polydimethylsiloxane (PDMS) are used as transfer medium^[108]. (j) Image of multilayer MoS_2 films with precise-controlled twist angles on Si substrates with 300 nm SiO_2 ^[108].

异质结莫尔超晶格的价带电子态分布可以用二维 Hubbard 理论模型来描述^[112,113], 这种模型可以用来解释高温超导、磁性绝缘体及复杂量子多体作用等多种现象. Shan 和 Mak 课题组^[113]利用 WS_2/WSe_2 莫尔超晶格从实验上模拟了这一理论.

除了超导和关联绝缘态等, 研究 TMDs 转角体系中的磁相互作用尤其是半填充处的磁相互作用对揭示体系的内在本质具有重要意义. 铜氧化合物超导体中存在电阻随温度线性变化以及电阻随磁场线性变化的关系^[114], 转角双层 WSe_2 半填充附近的金属相中存在类似的行为^[32]. 在 WSe_2/WS_2 半填充处, 谷 g 因子高达 270^[113], 远超过单层 TMDs 的谷 g 因子, 意味着莫尔平带增强了电子间相互作用. 通过光学与电输运实验证明, WSe_2/WS_2 半填充是具有 Curie-Weiss 行为的反铁磁态. AA 堆垛

的 $\text{WSe}_2/\text{MoTe}_2$ 异质结中的莫特绝缘态对平行磁场没有任何响应, 说明体系存在很强的 Ising 自旋-轨道相互作用^[33]. 在 AB 堆垛的 $\text{WSe}_2/\text{MoTe}_2$ 异质结中通过平行磁场的响应和非局域测量证明在全填充处存在一个随电场变化的量子谷-自旋霍尔绝缘体^[34]. TMDs 莫尔超晶格的磁输运是既丰富又十分复杂的现象, 受到电子相互作用、塞曼能变化及不同散射机制的影响.

许多强关联的现象需要样品保持低载流子浓度, 在电输运测量中接触依然是最重要的问题. 为了解决这个问题, 许多课题组采用非输运的方法来探测这个体系中的强关联物理现象, 例如利用扫描隧道显微镜直接观测电子态和态密度, 或者采用光学测量中的反射谱、光学探测电阻、微分电容、微波阻抗等探测手段^[115–119]. 很多实验显示当电荷有

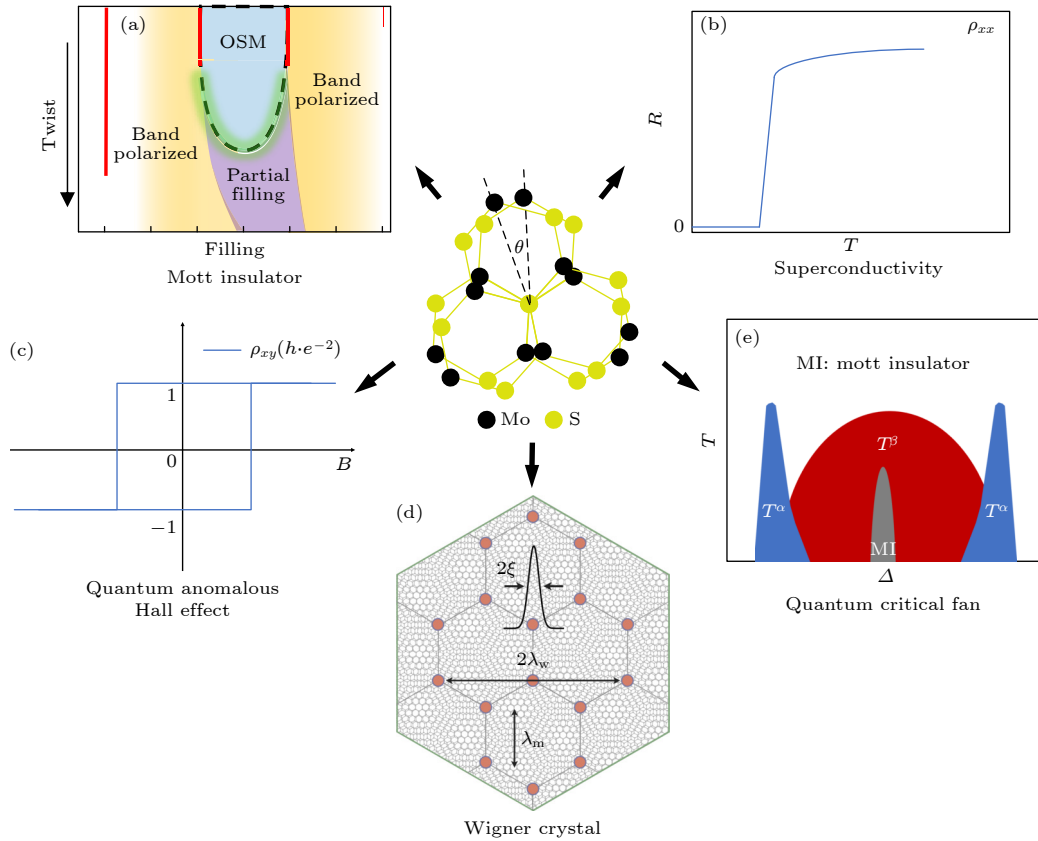


图 4 转角双层二硫化钼中可能存在的强关联现象 (a) 关联绝缘态, 红线代表莫特绝缘态; 蓝色区域代表电荷局域态与费米液体共存的状态, 称为轨道选择性莫特态; 黑色虚线内代表近藤晶格模型^[101]; (b) 整数填充附近的超导相变; (c) 量子反常霍尔效应; (d) 魏格纳晶格态, 图 (d) 表示了 $2/3$ 电子填充态^[123]; (e) 量子临界行为, 红色和蓝色区域表示电阻随温度的依赖关系, 其中 $\alpha \neq \beta$

Fig. 4. Strong correlation phenomenon predicted in twisted bilayer MoS_2 . (a) Schematic phase diagram. A charge localized state of one species can coexist with a Fermi liquid state of the other, which is known as the orbitally selective Mott (OSM) state. Inside the region marked by the dashed black line the essential ingredients of a Kondo lattice model are realized. The red lines indicate correlated insulating states^[101]. (b) Superconductivity in the doped Mott insulator. (c) Quantum anomalous Hall effect. (d) Wigner Crystal state. The figure shows representative $2/3$ electron filling^[123]. (e) Quantum critical behaviors in which $\alpha \neq \beta$. The blue and red regions indicate the resistance dependence on temperature.

序填充到 TMDs 的莫尔超晶格时, 体系就会出现关联的绝缘态, 其中在整数填充处称为莫特绝缘态, 在分数电荷填充处称为广义的维格纳晶格^[117]. Wang 课题组^[118]利用扫描隧穿显微镜 (STM) 的 dI/dV 谱直接观测到 $1/3$, $1/2$, $2/3$, 1 等电荷填充态. 值得注意的是魏格纳晶格相的电输运信号在这个体系之前只在非常干净的 GaAs/AlGaAs 体系^[120]和石墨烯体系^[121]中观测到, 同时还需要在极低温的条件测量^[122]. 目前在 TMDs 莫尔超晶格体系的电输运工作并未发现维格纳晶格, 这可能和样品在大尺度下的角度不均匀以及样品中存在一些杂质态有关. 对于整数填充, 电输运测量信号相对可靠一些. Mak 课题组^[119]利用电容测量的办法观测到在 $WS_2/MoSe_2$ 异质结的导带底部存在 4 条哈伯德子能带, 带宽随着能量增加而增加. 在第 1 条子能带中, 当电荷填充到 $1/3$, $1/2$, $2/3$ 时又会出现魏格纳晶格, 在这些子能带中还存在 $4/3$, $5/3$ 等分数填充态. Shan 课题组^[117]巧妙地利用 WSe_2 的 A 激子 1s, 2s 和 3s 反射谱对临近样品绝缘性进行感应. WSe_2 的 2s 反射谱可探测 WS_2/WSe_2 异质莫尔超晶格中非常丰富的关联绝缘态以及分数填充态.

通过目前的实验结果, 并结合二硫化钼导带独特的能带结构, 我们在图 4 中概括了转角双层二硫化钼中可能出现的强关联效应. 图 4(a) 展示了在很宽填充范围内稳定存在的轨道选择性莫特绝缘态. 其中一个子能带处于电子束缚的莫特态, 而另一个子能带保持了电子密度可变的巡游状态, 因此有效实现了近藤晶格模型的基本成分; 图 4(b) 为处于临界温度以下, 半填充附近可能出现超导转变, 体系的电阻迅速降至零; 图 4(c) 展示了转角二硫化钼中可能存在由于非平庸的拓扑能带所导致的量子反常霍尔态, 在零磁场下横向霍尔电阻呈现量子化, h/e^2 ($\sim 25812.8 \Omega$); 图 4(d) 为广义维格纳晶体. 当电子掺杂达到 $1/3$, $2/3$ 等非整数填充时, 会自发形成周期性的点阵, 或者说电荷密度波; 图 4(e) 为量子临界行为的示意图. 在整数填充所导致的莫特绝缘态附近, 通过调控掺杂或者位移电场观测到电阻的标度崩塌, 支持量子临界性的存在, 与二维连续莫特跃变的普遍临界理论是一致的.

5 总 结

单层二硫化钼具有很新奇的电学性质包括带

边载流子的谷赝自旋, 谷相关贝利曲率, 强自旋-轨道耦合导致的自旋谷锁定效应, 强库仑相互作用等. 虽然二硫化钼的晶格结构复杂, 但是其输运和光学性质主要由带边的 K 谷来决定, 是一个相对简单的有质量的费米子模型. 双层二硫化钼的性质很容易受到电场调控, 可以用来调控自旋和谷电子学并实现一些应用. 二硫化钼具备较大的载流子有效质量和强电子相互作用, 具备成为强关联体系的要素. 通过构建合适的莫尔超晶格结构, 人们在输运上可以看到例如超导、关联绝缘态、铁磁态等有意思的物理现象. 最近两年这一领域的研究刚热门起来, 无论是理论还有实验均不完善, 意味着我们有很多机会去探索新的基础物理现象以及潜在的应用.

随着对二硫化钼内在输运物理的理解, 制备出的器件迁移率越来越高, 工艺经验不断积累, 包括保持干净的接触界面、功函数匹配、六方氮化硼封装、石墨烯接触等. 但是在满足强关联物理所需的较低掺杂浓度范围内, 目前的器件接触还有待提高. 最近报道称利用铍金属作为二硫化钼的接触电极会达到零肖特基势垒^[124], 这对二硫化钼的低温电输运研究提供了一个可行的方案. 但是如何兼容目前的诸多工艺并提高样品与器件的质量依然存在挑战^[125], 仍需多个领域的学者共同努力. 可以预见, 二硫化钼的研究和应用依然是一个未来活跃的领域.

参考文献

- [1] Liu G B, Xiao D, Yao Y, Xu X, Yao W 2015 *Chem. Soc. Rev.* **44** 2643
- [2] Geim A K, Grigorieva I V 2013 *Nature* **499** 419
- [3] Liu K K, Zhang W, Lee Y H, Lin Y C, Chang M T, Su C Y, Chang C S, Li H, Shi Y, Zhang H, Lai C S, Li L J 2012 *Nano Lett.* **12** 1538
- [4] Zhan Y, Liu Z, Najmaei S, Ajayan P M, Lou J 2012 *Small* **8** 966
- [5] van der Zande A M, Huang P Y, Chenet D A, Berkelbach T C, You Y, Lee G H, Heinz T F, Reichman D R, Muller D A, Hone J C 2013 *Nat. Mater.* **12** 554
- [6] Zhang Y, Chang T R, Zhou B, Cui Y T, Yan H, Liu Z, Schmitt F, Lee J, Moore R, Chen Y, Lin H, Jeng H T, Mo S K, Hussain Z, Bansil A, Shen Z X 2014 *Nat. Nanotechnol.* **9** 111
- [7] Liu H, Jiao L, Yang F, Cai Y, Wu X, Ho W, Gao C, Jia J, Wang N, Fan H, Yao W, Xie M 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 066105
- [8] Wang Q, Li N, Tang J, Zhu J, Zhang Q, Jia Q, Lu Y, Wei Z, Yu H, Zhao Y, Guo Y, Gu L, Sun G, Yang W, Yang R, Shi D, Zhang G 2020 *Nano Lett.* **20** 7193

- [9] Yu H, Liao M, Zhao W, Liu G, Zhou X J, Wei Z, Xu X, Liu K, Hu Z, Deng K, Zhou S, Shi J A, Gu L, Shen C, Zhang T, Du L, Xie L, Zhu J, Chen W, Yang R, Shi D, Zhang G 2017 *ACS Nano* **11** 12001
- [10] Wei Z, Wang Q Q, Guo Y T, Li J W, Shi D X, Zhang G Y 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 128103 (in Chinese) [魏争, 王琴琴, 郭玉拓, 李佳蔚, 时东霞, 张广宇 2018 物理学报 **67** 128103]
- [11] Wang H, Li C, Fang P, Zhang Z, Zhang J Z 2018 *Chem. Soc. Rev.* **47** 6101
- [12] Splendiani A, Sun L, Zhang Y, Li T, Kim J, Chim C Y, Galli G, Wang F 2010 *Nano Lett.* **10** 1271
- [13] Mak K F, Lee C, Hone J, Shan J, Heinz T F 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 136805
- [14] Xiao D, Liu G B, Feng W, Xu X, Yao W 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 196802
- [15] Yao W, Xiao D, Niu Q 2008 *Phys. Rev. B* **77** 235406
- [16] Zeng H, Dai J, Yao W, Xiao D, Cui X 2012 *Nat. Nanotechnol.* **7** 490
- [17] Cao T, Wang G, Han W, Ye H, Zhu C, Shi J, Niu Q, Tan P, Wang E, Liu B, Feng J 2012 *Nat. Commun.* **3** 887
- [18] Molina-Sánchez A, Sangalli D, Hummer K, Marini A, Wirtz L 2013 *Phys. Rev. B* **88** 045412
- [19] Wu Z, Zhou B T, Cai X, Cheung P, Liu G B, Huang M, Lin J, Han T, An L, Wang Y, Xu S, Long G, Cheng C, Law K T, Zhang F, Wang N 2019 *Nat. Commun.* **10** 611
- [20] Ma N, Jena D 2014 *Phys. Rev. X* **4** 011043
- [21] Gustafsson M V, Yankowitz M, Forsythe C, Rhodes D, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J, Zhu X, Dean C R 2018 *Nat. Mater.* **17** 411
- [22] Larentis S, Movva H C P, Fallahazad B, Kim K, Behroozi A, Taniguchi T, Watanabe K, Banerjee S K, Tutuc E 2018 *Phys. Rev. B* **97** 201407
- [23] Fallahazad B, Movva H C, Kim K, Larentis S, Taniguchi T, Watanabe K, Banerjee S K, Tutuc E 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 086601
- [24] Ye Z, Cao T, O'Brien K, Zhu H, Yin X, Wang Y, Louie S G, Zhang X 2014 *Nature* **513** 214
- [25] Pudalov V M, Gershenson M E, Kojima H 2014 *Phys. Rev. B* **90** 075147
- [26] Feng J, Qian X, Huang C W, Li J 2012 *Nat. Photonics* **6** 866
- [27] Qiu D Y, da Jornada F H, Louie S G 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 216805
- [28] Miller D A B, Chemla D S, Damen T C, Gossard A C, Wiegmann W, Wood T H, Burrus C A 1984 *Phys. Rev. Lett.* **53** 2173
- [29] Pospischil A, Furchi M M, Mueller T 2014 *Nat. Nanotechnol.* **9** 257
- [30] Baugher B W, Churchill H O, Yang Y, Jarillo-Herrero P 2014 *Nat. Nanotechnol.* **9** 262
- [31] Wang L, Shih E M, Ghiotto A, Xian L, Rhodes D A, Tan C, Claassen M, Kennes D M, Bai Y, Kim B, Watanabe K, Taniguchi T, Zhu X, Hone J, Rubio A, Pasupathy A N, Dean C R 2020 *Nat. Mater.* **19** 861
- [32] Ghiotto A, Shih E M, Pereira G, Rhodes D A, Kim B, Zang J, Millis A J, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J C, Wang L, Dean C R, Pasupathy A N 2021 *Nature* **597** 345
- [33] Li T, Jiang S, Li L, Zhang Y, Kang K, Zhu J, Watanabe K, Taniguchi T, Chowdhury D, Fu L, Shan J, Mak K F 2021 *Nature* **597** 350
- [34] Li T, Jiang S, Shen B, Zhang Y, Li L, Tao Z, Devakul T, Watanabe K, Taniguchi T, Fu L, Shan J, Mak K F 2021 *Nature* **600** 641
- [35] Ji Y R, Chu Y B, Xian L D, Yang W, Zhang G Y 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 118101 (in Chinese) [季怡汝, 褚衍邦, 洗乐德, 杨威, 张广宇 2021 物理学报 **70** 118101]
- [36] Brivio J, Alexander D T, Kis A 2011 *Nano Lett.* **11** 5148
- [37] Cheiwchanchamnangij T, Lambrecht W R L 2012 *Phys. Rev. B* **85** 205302
- [38] Molina-Sánchez A, Wirtz L 2011 *Phys. Rev. B* **84** 155413
- [39] Feng W, Yao Y, Zhu W, Zhou J, Yao W, Xiao D 2012 *Phys. Rev. B* **86** 165108
- [40] Kośmider K, González J W, Fernández-Rossier J 2013 *Phys. Rev. B* **88** 245436
- [41] Zhao Y, Du L, Yang S, Tian J, Li X, Shen C, Tang J, Chu Y, Watanabe K, Taniguchi T, Yang R, Shi D, Sun Z, Ye Y, Yang W, Zhang G 2022 *Phys. Rev. B* **105** L041411
- [42] Shen C, Zhang J, Shi D, Zhang G 2015 *Acta Chim. Sin.* **73** 954 (in Chinese) [沈成, 张菁, 时东霞, 张广宇 2015 化学学报 **73** 954]
- [43] Marinov K, Avsar A, Watanabe K, Taniguchi T, Kis A 2017 *Nat. Commun.* **8** 1938
- [44] Ando T, Fowler A B, Stern F 1982 *Rev. Mod. Phys.* **54** 437
- [45] Fang H, Tosun M, Seol G, Chang T C, Takei K, Guo J, Javey A 2013 *Nano Lett.* **13** 1991
- [46] Baugher B W, Churchill H O, Yang Y, Jarillo-Herrero P 2013 *Nano Lett.* **13** 4212
- [47] Tang J, Wang Q, Wei Z, Shen C, Lu X, Wang S, Zhao Y, Liu J, Li N, Chu Y, Tian J, Wu F, Yang W, He C, Yang R, Shi D, Watanabe K, Taniguchi T, Zhang G 2020 *Adv. Electron. Mater.* **6** 2000550
- [48] Zhou S H, Zhou C W, Yang X D, Li Y, Zhong J Q, Mao H Y 2021 *Chin. Phys. Lett.* **38** 057305
- [49] Schmidt H, Giustiniano F, Eda G 2015 *Chem. Soc. Rev.* **44** 7715
- [50] Radisavljevic B, Radenovic A, Brivio J, Giacometti V, Kis A 2011 *Nat. Nanotechnol.* **6** 147
- [51] Lembke D, Kis A 2012 *ACS Nano* **6** 10070
- [52] Novoselov K S, Jiang D, Schedin F, Booth T J, Khotkevich V V, Morozov S V, Geim A K 2005 *PNAS* **102** 30
- [53] Kapperla R, Voiry D, Yalcin S E, Jen W, Acerce M, Torrel S, Branch B, Lei S, Chen W, Najmaei S, Lou J, Ajayan P M, Gupta G, Mohite A D, Chhowalla M 2014 *APL Mater.* **2** 092516
- [54] Radisavljevic B, Kis A 2013 *Nat. Mater.* **12** 815
- [55] Schmidt H, Wang S, Chu L, Toh M, Kumar R, Zhao W, Neto A H, Martin J, Adam S, Ozyilmaz B, Eda G 2014 *Nano Lett.* **14** 1909
- [56] Cui X, Lee G H, Kim Y D, Arefe G, Huang P Y, Lee C H, Chenet D A, Zhang X, Wang L, Ye F, Pizzocchero F, Jessen B S, Watanabe K, Taniguchi T, Muller D A, Low T, Kim P, Hone J 2015 *Nat. Nanotechnol.* **10** 534
- [57] Lin J, Han T, Piot B A, Wu Z, Xu S, Long G, An L, Cheung P, Zheng P P, Plochocka P, Dai X, Maude D K, Zhang F, Wang N 2019 *Nano Lett.* **19** 1736
- [58] Pisoni R, Kormanyos A, Brooks M, Lei Z, Back P, Eich M, Overweg H, Lee Y, Rickhaus P, Watanabe K, Taniguchi T, Imamoglu A, Burkard G, Ihn T, Ensslin K 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 247701
- [59] Isihara A, Smrcka L 1986 *J. Phys. C:Solid State Phys.* **19** 6777
- [60] Kormányos A, Rakyta P, Burkard G 2015 *New J. Phys.* **17** 103006
- [61] Mak K F, McGill K L, Park J, McEuen P L 2014 *Science* **344** 1489
- [62] Zhou B T, Taguchi K, Kawaguchi Y, Tanaka Y, Law K T 2019 *Commun. Phys.* **2** 26
- [63] Canonico L M, Cysne T P, Molina-Sanchez A, Muniz R B,

- Rappoport T G 2020 *Phys. Rev. B* **101** 161409
- [64] Sun Z H, Guan H M, Fu L, Shen B, Tang N 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 027302 (in Chinese) [孙真昊, 管鸿明, 付雷, 沈波, 唐宁 2021 物理学报 **70** 027302]
- [65] Onga M, Zhang Y, Ideue T, Iwasa Y 2017 *Nat. Mater.* **16** 1193
- [66] Lu J M, Zheliuk O, Leermakers I, Yuan N F Q, Zeitler U, Law K T, Ye J T 2015 *Science* **350** 1353
- [67] Conley H J, Wang B, Ziegler J I, Haglund R F, Jr., Pantelides S T, Bolotin K I 2013 *Nano Lett.* **13** 3626
- [68] Zhou W, Zou X, Najmaei S, Liu Z, Shi Y, Kong J, Lou J, Ajayan P M, Yakobson B I, Idrobo J C 2013 *Nano Lett.* **13** 2615
- [69] Wu S, Ross J S, Liu G B, Aivazian G, Jones A, Fei Z, Zhu W, Xiao D, Yao W, Cobden D, Xu X 2013 *Nat. Phys.* **9** 149
- [70] Kormányos A, Zólyomi V, Fal'ko V I, Burkard G 2018 *Phys. Rev. B* **98** 035408
- [71] Chen P, Cheng C, Shen C, Zhang J, Wu S, Lu X, Wang S, Du L, Watanabe K, Taniguchi T, Sun J, Yang R, Shi D, Liu K, Meng S, Zhang G 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 083104
- [72] Lee J, Mak K F, Shan J 2016 *Nat. Nanotechnol.* **11** 421
- [73] Du L, Zhang T, Liao M, Liu G, Wang S, He R, Ye Z, Yu H, Yang R, Shi D, Yao Y, Zhang G 2018 *Phys. Rev. B* **97** 165410
- [74] Pisoni R, Davatz T, Watanabe K, Taniguchi T, Ihn T, Ensslin K 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 117702
- [75] Suzuki R, Sakano M, Zhang Y J, Akashi R, Morikawa D, Harasawa A, Yaji K, Kuroda K, Miyamoto K, Okuda T, Ishizaka K, Arita R, Iwasa Y 2014 *Nat. Nanotechnol.* **9** 611
- [76] Eda G, Yamaguchi H, Voiry D, Fujita T, Chen M, Chhowalla M 2011 *Nano Lett.* **11** 5111
- [77] Yu Y, Nam G H, He Q, Wu X J, Zhang K, Yang Z, Chen J, Ma Q, Zhao M, Liu Z, Ran F R, Wang X, Li H, Huang X, Li B, Xiong Q, Zhang Q, Liu Z, Gu L, Du Y, Huang W, Zhang H 2018 *Nat. Chem.* **10** 638
- [78] Zhang H Z, Xu C Y, Nan H Y, Xiao S Q, Gu X F 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 246101 (in Chinese) [张浩哲, 徐春燕, 南海燕, 肖少庆, 顾晓峰 2020 物理学报 **69** 246101]
- [79] Kappera R, Voiry D, Yalcin S E, Branch B, Gupta G, Mohite A D, Chhowalla M 2014 *Nat. Mater.* **13** 1128
- [80] Zhu J, Wang Z, Yu H, Li N, Zhang J, Meng J, Liao M, Zhao J, Lu X, Du L, Yang R, Shi D, Jiang Y, Zhang G 2017 *J. Am. Chem. Soc.* **139** 10216
- [81] Shirodkar S N, Waghmare U V 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 157601
- [82] Zhao W, Pan J, Fang Y, Che X, Wang D, Bu K, Huang F 2018 *Chemistry* **24** 15942
- [83] Bistrizter R, MacDonald A H 2011 *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **108** 12233
- [84] Cao Y, Fatemi V, Demir A, Fang S, Tomarken S L, Luo J Y, Sanchez-Yamagishi J D, Watanabe K, Taniguchi T, Kaxiras E, Ashoori R C, Jarillo-Herrero P 2018 *Nature* **556** 80
- [85] Cao Y, Fatemi V, Fang S, Watanabe K, Taniguchi T, Kaxiras E, Jarillo-Herrero P 2018 *Nature* **556** 43
- [86] Lu X, Stepanov P, Yang W, Xie M, Aamir M A, Das I, Urgell C, Watanabe K, Taniguchi T, Zhang G, Bachtold A, MacDonald A H, Efetov D K 2019 *Nature* **574** 653
- [87] Shen C, Chu Y, Wu Q, Li N, Wang S, Zhao Y, Tang J, Liu J, Tian J, Watanabe K, Taniguchi T, Yang R, Meng Z Y, Shi D, Yazeyev O V, Zhang G 2020 *Nat. Phys.* **16** 520
- [88] Xian L, Claassen M, Kiese D, Scherer M M, Trebst S, Kennes D M, Rubio A 2021 *Nat. Commun.* **12** 5644
- [89] He J, Hummer K, Franchini C 2014 *Phys. Rev. B* **89** 075409
- [90] Suri N, Wang C, Zhang Y, Xiao D 2021 *Nano Lett.* **21** 10026
- [91] Yu H, Yao W 2021 *Phys. Rev. X* **11** 021042
- [92] Fleischmann M, Gupta R, Sharma S, Shallcross S 2019 arXiv:1901.04679v1 [cond-mat.mes-hall]
- [93] Zhang Z M, Wang Y M, Watanabe K, Taniguchi T, Ueno K, Tutuc E, LeRoy B J 2019 arXiv:1910.13068 [cond-mat.str-el]
- [94] Naik M H, Jain M 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 266401
- [95] Naik M H, Kundu S, Maity I, Jain M 2020 *Phys. Rev. B* **102** 075413
- [96] Wu F, Lovorn T, Tutuc E, Martin I, MacDonald A H 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 086402
- [97] Devakul T, Crepel V, Zhang Y, Fu L 2021 *Nat. Commun.* **12** 6730
- [98] Roch J G, Froehlicher G, Leisgang N, Makk P, Watanabe K, Taniguchi T, Warburton R J 2019 *Nat. Nanotechnol.* **14** 432
- [99] Roch J G, Miserev D, Froehlicher G, Leisgang N, Sponfeldner L, Watanabe K, Taniguchi T, Klinovaja J, Loss D, Warburton R J 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 187602
- [100] Zhou B T, Egan S, Franz M 2022 *Phys. Rev. Res.* **4** L012032
- [101] Dalal A, Ruhman J 2021 *Phys. Rev. Res.* **3** 043173
- [102] Huang S, Liang L, Ling X, Puzos A A, Geohegan D B, Sumpter B G, Kong J, Meunier V, Dresselhaus M S 2016 *Nano Lett.* **16** 1435
- [103] Lin M L, Tan Q H, Wu J B, Chen X S, Wang J H, Pan Y H, Zhang X, Cong X, Zhang J, Ji W, Hu P A, Liu K H, Tan P H 2018 *ACS Nano* **12** 8770
- [104] Yeh P C, Jin W, Zaki N, Kunstmann J, Chenet D, Arefe G, Sadowski J T, Dadap J I, Sutter P, Hone J, Osgood R M, Jr. 2016 *Nano Lett.* **16** 953
- [105] Liu K, Zhang L, Cao T, Jin C, Qiu D, Zhou Q, Zettl A, Yang P, Louie S G, Wang F 2014 *Nat. Commun.* **5** 4966
- [106] Naik M H, Maity I, Maiti P K, Jain M 2019 *J. Phys. Chem. C* **123** 9770
- [107] Quan J, Linhart L, Lin M L, Lee D, Zhu J, Wang C Y, Hsu W T, Choi J, Embley J, Young C, Taniguchi T, Watanabe K, Shih C K, Lai K, MacDonald A H, Tan P H, Libisch F, Li X 2021 *Nat. Mater.* **20** 1100
- [108] Liao M, Wei Z, Du L, Wang Q, Tang J, Yu H, Wu F, Zhao J, Xu X, Han B, Liu K, Gao P, Polcar T, Sun Z, Shi D, Yang R, Zhang G 2020 *Nat. Commun.* **11** 2153
- [109] Kim K, Yankowitz M, Fallahazad B, Kang S, Movva H C, Huang S, Larentis S, Corbet C M, Taniguchi T, Watanabe K, Banerjee S K, LeRoy B J, Tutuc E 2016 *Nano Lett.* **16** 1989
- [110] Liao M, Nicolini P, Du L, Yuan J, Wang S, Yu H, Tang J, Cheng P, Watanabe K, Taniguchi T, Gu L, Claerbout V E P, Silva A, Kramer D, Polcar T, Yang R, Shi D, Zhang G 2022 *Nat. Mater.* **21** 47
- [111] An L, Cai X, Pei D, Huang M, Wu Z, Zhou Z, Lin J, Ying Z, Ye Z, Feng X, Gao R, Cacho C, Watson M, Chen Y, Wang N 2020 *Nanoscale Horiz.* **5** 1309
- [112] Wu F, Lovorn T, Tutuc E, MacDonald A H 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 026402
- [113] Tang Y, Li L, Li T, Xu Y, Liu S, Barmak K, Watanabe K, Taniguchi T, MacDonald A H, Shan J, Mak K F 2020 *Nature* **579** 353
- [114] Giraldo-Gallo P, Galvis J A, Stegen Z, Modic K A, Balakirev F F, Betts J B, Lian X, Moir C, Riggs S C, Wu J, Bollinger A T, He X, Bozovic I, Ramshaw B J, McDonald R D, Boebinger G S, Shekhter A 2018 *Science* **361** 479
- [115] Chu Z, Regan E C, Ma X, Wang D, Xu Z, Utama M I B, Yumigeta K, Blei M, Watanabe K, Taniguchi T, Tongay S,

- Wang F, Lai K 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 186803
- [116] Regan E C, Wang D, Jin C, Bakti Utama M I, Gao B, Wei X, Zhao S, Zhao W, Zhang Z, Yumigeta K, Blei M, Carlstrom J D, Watanabe K, Taniguchi T, Tongay S, Crommie M, Zettl A, Wang F 2020 *Nature* **579** 359
- [117] Xu Y, Liu S, Rhodes D A, Watanabe K, Taniguchi T, Hone J, Elser V, Mak K F, Shan J 2020 *Nature* **587** 214
- [118] Li H, Li S, Regan E C, Wang D, Zhao W, Kahn S, Yumigeta K, Blei M, Taniguchi T, Watanabe K, Tongay S, Zettl A, Crommie M F, Wang F 2021 *Nature* **597** 650
- [119] Li T, Zhu J, Tang Y, Watanabe K, Taniguchi T, Elser V, Shan J, Mak K F 2021 *Nat. Nanotechnol.* **16** 1068
- [120] Jang J, Hunt B M, Pfeiffer L N, West K W, Ashoori R C 2016 *Nat. Phys.* **13** 340
- [121] Kumar M, Laitinen A, Hakonen P 2018 *Nat. Commun.* **9** 2776
- [122] Goldman V J, Santos M, Shayegan M, Cunningham J E 1990 *Phys. Rev. Lett.* **65** 2189
- [123] Padhi B, Chitra R, Phillips P W 2021 *Phys. Rev. B* **103** 125146
- [124] Shen P C, Su C, Lin Y, Chou A S, Cheng C C, Park J H, Chiu M H, Lu A Y, Tang H L, Tavakoli M M, Pitner G, Ji X, Cai Z, Mao N, Wang J, Tung V, Li J, Bokor J, Zettl A, Wu C I, Palacios T, Li L J, Kong J 2021 *Nature* **593** 211
- [125] Li S L, Tsukagoshi K, Orgiu E, Samori P 2016 *Chem. Soc. Rev.* **45** 118

SPECIAL TOPIC—Novel properties of low-dimensional materials

Experimental research progress of electronic band structure and low temperature transport based on molybdenum disulfide^{*}

Wu Fan-Fan¹⁾²⁾ Ji Yi-Ru¹⁾²⁾ Yang Wei^{1)2)3)†} Zhang Guang-Yu¹⁾²⁾³⁾

1) (*Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

2) (*School of Physical Sciences, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

3) (*Songshan Lake Materials Laboratory, Dongguan 523808, China*)

(Received 4 January 2022; revised manuscript received 11 February 2022)

Abstract

Molybdenum disulfide is a layered transition metal chalcogenide semiconductor. It has many applications in the fields of two-dimensional spintronics, valleytronics and optoelectronics. In this review, molybdenum disulfide is taken as a representative to systematically introduce the energy band structures of single layer, bilayer and twisted bilayer molybdenum disulfide, as well as the latest experimental progress of its realization and low-temperature electrical transport, such as superconductivity and strong correlation phenomenon. Finally, two-dimensional transition metal chalcogenide moiré superlattice's challenges in optimizing contact and sample quality are analyzed and the future development of this field is also presented.

Keywords: molybdenum disulfide, band structure, low temperature transport, moiré superlattice

PACS: 73.22.-f, 73.50.-h, 74.70.Xa, 73.21.Cd

DOI: 10.7498/aps.71.20220015

^{*} Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant Nos. 2020YFA0309600, 2021YFA1202900), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11834017, 61888102), the Strategic Priority Research Program of Chinese Academy of Sciences (Grant Nos. XDB30000000, XDB33000000), and the Key-Area Research and Development Program of Guangdong Province, China (Grant No. 2020B0101340001).

[†] Corresponding author. E-mail: wei.yang@iphy.ac.cn